

L8 ANSWER 3 OF 4 CA COPYRIGHT 2003 ACS

AN 129:136890 CA

TI Fire-resistant resin compositions with high safety and less smoke emission

on burning

IN Hiro, Tomoki; Aoyama, Taizo

PA Kanegafuchi Chemical Industry Co., Ltd., Japan

SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 11 pp.

CODEN: JKXXAF

DT Patent

LA Japanese

IC ICM C08L083-10

ICS C08K003-24; C08K003-32; C08K005-02; C08K005-521; C08L027-18;

C08L055-02; C08L067-02; C08L069-00; C08L071-12; C08L083-10;

C08L071-02; C08L025-06

CC 37-6 (Plastics Manufacture and Processing)

FAN.CNT 1

	PATENT NO.	KIND	DATE	APPLICATION NO.	DATE
PI	JP 10168319	A2	19980623	JP 1996-342473	19961205
PRAI	JP 1996-342473		19961205		

AB The compns. comprise (a) organopolysiloxane-polyesters or organopolysiloxane-polycarbonates and (b) org. polymers. Prepg. a polycarbonate-siloxane (wt. mol. wt. 38,000) from bisphenol A 1140, di-Me carbonate 450, and dimethoxydimethylsilane 360 g, and kneading (30 parts) with 100 parts polycarbonate (Panlite L1250), and injection molding gave test pieces with UL 94 burning test V-0, limiting O index 30.6%, and a small amt. of smoke emission.

ST fire resistant resin safety smoke emission; polycarbonate siloxane fire resistant compn

IT Fire-resistant materials

Safety

(fire-resistant resin compns. contg. polyester- or polycarbonate-siloxanes with high safety and less smoke emission on burning)

IT Fluoropolymers, properties

Polycarbonates, properties

Polyesters, properties

Polymer blends

Polymers, properties

RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); USES (Uses)

(fire-resistant resin compns. contg. polyester- or polycarbonate-siloxanes with high safety and less smoke emission on burning)

IT Polysiloxanes, properties

Polysiloxanes, properties

RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); USES (Uses)

(polycarbonate-; fire-resistant resin compns. contg. polycarbonate-siloxanes with high safety and less smoke emission on burning)

IT Polysiloxanes, properties

Polysiloxanes, properties

RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); USES (Uses)

(polyester-, polycarbonate-; fire-resistant resin compns. contg. polyester- or polycarbonate-siloxanes with high safety and less smoke emission on burning)

IT Polyesters, properties

Polyesters, properties

RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); USES (Uses)

(polysiloxane-, polycarbonate-; fire-resistant resin compns. contg.

polyester- or polycarbonate-siloxanes with high safety and less smoke emission on burning)

IT Polycarbonates, properties  
 Polycarbonates, properties  
 RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); USES (Uses)  
 (polysiloxane-; fire-resistant resin compns. contg. polyester- or polycarbonate-siloxanes with high safety and less smoke emission on burning)

IT **210469-12-8P**, Bisphenol A-dimethyl carbonate-dimethoxydimethylsilane copolymer **210540-84-4P**  
 RL: IMF (Industrial manufacture); POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); PREP (Preparation); USES (Uses)  
 (fire-resistant resin compns. contg. polyester- or polycarbonate-siloxanes with high safety and less smoke emission on burning)

IT 79-94-7D, epoxy oligomer **9002-84-0**, PTFE 9003-56-9, ABS 12  
**24936-68-3**, properties **24968-12-5**, Duranex 2002  
**25038-59-9**, Bellpet EFG 7, properties  
 RL: POF (Polymer in formulation); PRP (Properties); USES (Uses)  
 (fire-resistant resin compns. contg. polyester- or polycarbonate-siloxanes with high safety and less smoke emission on burning)

**PATENT ABSTRACTS OF JAPAN**(11)Publication number : **10-168319**(43)Date of publication of application : **23.06.1998**

(51)Int.Cl.

C08L 83/10  
C08K 3/24  
C08K 3/32  
C08K 5/02  
C08K 5/521  
C08L 27/18  
C08L 55/02  
C08L 67/02  
C08L 69/00  
C08L 71/12  
// (C08L 83/10  
C08L 67:02 )  
(C08L 83/10  
C08L 69:00 )  
(C08L 83/10  
C08L 71:12 )  
(C08L 83/10  
C08L 55:02 )  
(C08L 83/10  
C08L 69:00  
C08L 55:02 )  
(C08L 83/10  
C08L 69:00  
C08L 67:02 )  
(C08L 83/10  
C08L 71:02  
C08L 25:06 )

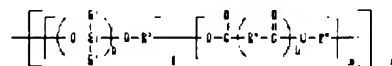
(21)Application number : **08-342473**(71)Applicant : **KANEGAFUCHI CHEM IND CO LTD**(22)Date of filing : **05.12.1996**(72)Inventor : **HIRO TOMOKI  
AOYAMA TAIZO**

**(54) FLAME-RETARDANT RESIN COMPOSITION**

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain the subject composition by essentially including a siloxane-based copolymer having specific structural unit so as to afford high safety, low smoke when burned and slight deterioration of its physical properties.

SOLUTION: This composition comprises (A) a siloxane-based copolymer of the formula [(a) is 1 or 2; (b) is 0 or 1; (l), (m) and (n) are each an integer of  $\geq 1$ ; R1 and R2 are each H or a 1-20C hydrocarbon; R3 and R4 are each 1-20C divalent hydrocarbon or R5-X-R6 (R5 and R6 are each a divalent aromatic hydrocarbon; X is a single bond, O, S, SO, etc.)] and (B) pref. 0.5-50wt.% of an organic polymer such as polyethylene terephthalate, polybutylene terephthalate or polycarbonate, and pref. furthermore, (C) 0.1-200 pts.wt., based on a total 100 pts.wt. of the components A and B, of a flame retardant and (D) 0.001-5 pts.wt., based on a total 100 pts.wt. of the components A and B, of an anti-dripping agent.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

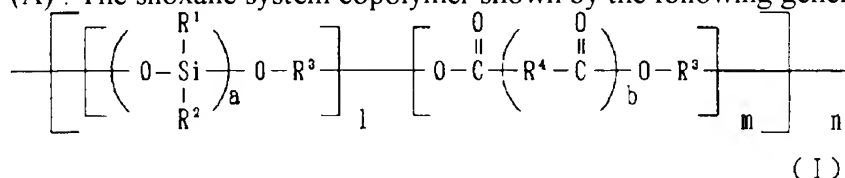
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## CLAIMS

## [Claim(s)]

[Claim 1] The flame-retardant-resin constituent which consists of the following component (A) and (B).

(A) : The siloxane system copolymer shown by the following general formula (I) [Formula 1]



1 or 2b of a is 0 or 1 among [formula. 1, m, and n are one or more positive integers, respectively. R1 And R2, respectively A hydrogen atom or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20 (However, the part or all the hydrogen atoms of a hydrocarbon group may be replaced by the halogen atom.) R3 is the divalent hydrocarbon group (however, the part or all the hydrogen atoms of a hydrocarbon group may be replaced by the halogen atom.) of carbon numbers 1-20, respectively. And R4 Or the basis expressed with -R5-X-R6- (however, R5 and R6 show a divalent aromatic-hydrocarbon machine, and the hydrogen atom of an aromatic ring may be replaced by the halogen atom, the hydrocarbon group, the alkoxy group, or the phenoxy machine.) Moreover, X shows the divalent hydrocarbon group of single bond, -O-, -S-, -SO-, -SO2-, -CO-, and carbon numbers 1-20. It is shown. ] (B) organic polymer.

[Claim 2] The flame-retardant-resin constituent according to claim 1 whose content of the organic polymer of a component (B) is 0.5 - 50 % of the weight.

[Claim 3] The flame-retardant-resin constituent according to claim 1 or 2 which comes to contain a component (C) flame retarder further.

[Claim 4] The flame-retardant-resin constituent according to claim 3 whose content of the flame retarder of a component (C) is the 0.1 - 300 weight section to a component (A) and a total of 100 weights sections of (B).

[Claim 5] A flame-retardant-resin constituent given in any 1 term of the claims 1-4 which come to contain (Component D) dripping inhibitor further.

[Claim 6] The flame-retardant-resin constituent according to claim 5 whose content of the dripping inhibitor of a component (D) is 0.001 - 5 weight section to a component (A) and a total of 100 weights sections of (B).

[Claim 7] A flame-retardant-resin constituent given in any 1 term of the claims 1-6 whose organic polymers of a component (B) are thermoplastics.

[Claim 8] The flame-retardant-resin constituent according to claim 7 whose organic polymer of a component (B) is a polyethylene terephthalate.

[Claim 9] The flame-retardant-resin constituent according to claim 7 whose organic polymer of a component (B) is a polybutylene terephthalate.

[Claim 10] The flame-retardant-resin constituent according to claim 7 whose organic polymer of a

component (B) is a polycarbonate.

[Claim 11] The flame-retardant-resin constituent according to claim 7 whose organic polymer of a component (B) is a polyphenylene ether.

[Claim 12] The flame-retardant-resin constituent according to claim 7 whose organic polymer of a component (B) is an acrylonitrile-styrene-butadiene-rubber system copolymer.

[Claim 13] The flame-retardant-resin constituent according to claim 7 whose organic polymer of a component (B) is the alloy of a polycarbonate and an acrylonitrile-styrene-butadiene-rubber system copolymer.

[Claim 14] The flame-retardant-resin constituent according to claim 7 whose organic polymer of a component (B) is the alloy of a polycarbonate and a polyethylene terephthalate.

[Claim 15] The flame-retardant-resin constituent according to claim 7 whose organic polymer of a component (B) is the alloy of a polyphenylene ether and polystyrene.

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

**Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.**

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

**DETAILED DESCRIPTION**

**[Detailed Description of the Invention]**

[0001]

[The technical field to which invention belongs] Safety is high in more detail about the flame-retardant-resin constituent with which this invention comes to contain a siloxane system copolymer, and there is fuming [ little / at the time of combustion ], and it is related with a flame-retardant-resin constituent with few falls of machine physical properties.

[0002]

[Description of the Prior Art] An organic polymer is the useful industrial product used for plastics, a film, fiber, adhesives, a paint, an extrusion sheet, etc., and, generally is excellent in lightweight nature, shock resistance, abrasion resistance, electric insulation, and fabricating-operation nature. However, such an organic polymer is lacking in fire retardancy, and it has a fault, such as producing gas detrimental at the time of combustion moreover. Therefore, when using such an organic polymer for the use of which fire retardancy is required, it is common to carry out flameproofing by usually adding the flame retarder represented by the halogen system. However, such a halogen system flame retarder produces harmful gas at the time of combustion, and the safety of the flame retarder itself not only poses a problem, but it has the trouble of reducing a mechanical strength depending on the addition.

[0003] As other flame retarders, the flame-retarder metallurgy group hydroxide metallurgy group oxide of the Lynn system is known. However, no these have enough fire retardancy, or have the problem of a mechanical strength falling by addition. As a means which raises the fire retardancy of an organic polymer, the siloxane compound attracts attention. It is the feature that the effect on a fire-resistant disposition is also high in addition to a siloxane compound having high safety. However, by the method of adding a silicone oil and a silicon resin by which the conventional proposal is made, there is a trouble that fire-resistant disposition top effect for a low case with the sufficient compatibility of a siloxane compound and a resin is not acquired, or a siloxane compound carries out bleeding to a front face.

[0004] The technology about a siloxane system copolymer is indicated as a means to solve such a trouble. For example, the fire-resistant polycarbonate-siloxane block copolymer is indicated in JP,5-262975,A. Moreover, the polyester (polyester carbonate)-siloxane block copolymer is indicated in JP,5-222173,A and JP,7-2999,A. However, in these official reports, the technology of using a siloxane system copolymer as a flame retarder is not indicated. Furthermore, since they contain a siloxane portion in block, these siloxane system copolymers have a limitation in the rate of siloxane introduction, are deficient in compatibility with an organic polymer, and have a problem of an inadequate flume in the fall of the mechanical property by phase separation, and the fire-resistant disposition top effect. Curry \*\* -- the synthesis method of the siloxane system copolymer obtained from a diol and a screw (Ernie Reno) diphenyl silane is reported (J. Appl. Polym. Sci., vol.9, pp.295 (1965)) Moreover, Carraher, Jr. and others have reported the synthesis method of the siloxane system copolymer obtained from a diol and a JIKUROROJI organosilane (J. Polym. Sci., partA-1, vol.8, and pp.973 (1970)). Since the polymer to generate serves as an alternating copolymer by these methods, it is possible to make the amount of

introduction of a siloxane increase. In JP,7-15053,B, the fire-resistant blend with this type of siloxane system copolymer [poly (aryloxy siloxane)] and an aromatic polycarbonate is indicated. However, by this method, when a poly (aryloxy siloxane) glass transition point is low and adds so much, there is a problem that the thermal resistance of an organic polymer falls.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The place which it is made in order that this invention may solve the above-mentioned conventional technical problem, and is made into the purpose has high safety, has fuming [ little / at the time of combustion ], and is for the fall of physical properties to offer a few flame-retardant-resin constituent.

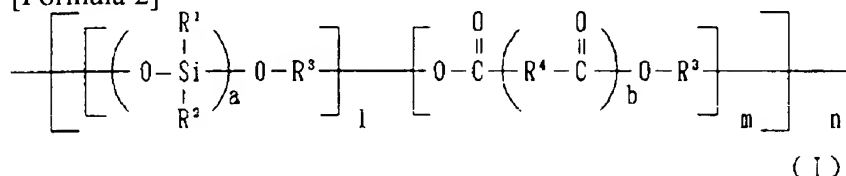
[0006]

[Means for Solving the Problem] In order to attain the aforementioned purpose, as a result of repeating research wholeheartedly, by using as an indispensable component the siloxane system copolymer which has a specific structural unit, this invention persons found out that the above-mentioned trouble could be solved, and completed this invention.

[0007] That is, this invention makes the content the flame-retardant-resin constituent which consists of the following component (A) and (B).

(A) : The siloxane system copolymer shown by the following general formula (I) [0008]

[Formula 2]



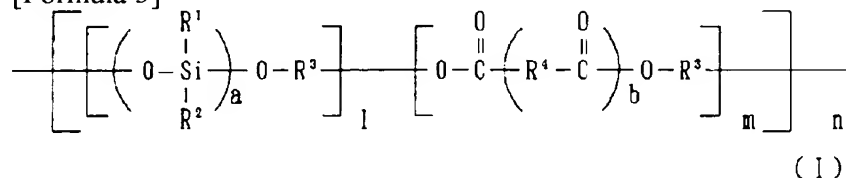
[0009] 1 or 2b of a is 0 or 1 among [formula. 1, m, and n are one or more positive integers, respectively. R1 And R2, respectively A hydrogen atom or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20 (However, the part or all the hydrogen atoms of a hydrocarbon group may be replaced by the halogen atom.) R3 is the divalent hydrocarbon group (however, the part or all the hydrogen atoms of a hydrocarbon group may be replaced by the halogen atom.) of carbon numbers 1-20, respectively. And R4 Or the basis expressed with -R5-X-R6- (however, R5 and R6 show a divalent aromatic-hydrocarbon machine, and the hydrogen atom of an aromatic ring may be replaced by the halogen atom, the hydrocarbon group, the alkoxy group, or the phenoxy machine.) Moreover, X shows the divalent hydrocarbon group of single bond, -O-, -S-, -SO-, -SO2-, -CO-, and carbon numbers 1-20. It is shown. ] (B) organic polymer. Moreover, this invention makes the content the flame-retardant-resin constituent which comes to contain at least one sort of a component (C) flame retarder and (Component D) dripping inhibitor in the above-mentioned flame-retardant-resin constituent further.

[0010]

[Embodiments of the Invention] Hereafter, this invention is explained in detail. In this invention, the siloxane system copolymer shown by the following general formula (I) is used as a component (A).

[0011]

[Formula 3]



[0012] 1 or 2b of a is 0 or 1 among [formula. 1, m, and n are one or more positive integers, respectively. R1 And R2, respectively A hydrogen atom or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20 (However, the part or all the hydrogen atoms of a hydrocarbon group may be replaced by the halogen atom.) R3 is



the divalent hydrocarbon group (however, the part or all the hydrogen atoms of a hydrocarbon group may be replaced by the halogen atom.) of carbon numbers 1-20, respectively. And R4 Or the basis expressed with -R5-X-R6- (however, R5 and R6 show a divalent aromatic-hydrocarbon machine, and the hydrogen atom of an aromatic ring may be replaced by the halogen atom, the hydrocarbon group, the alkoxy group, or the phenoxy machine.) Moreover, X shows the divalent hydrocarbon group of single bond, -O-, -S-, -SO-, -SO2-, -CO-, and carbon numbers 1-20. It is shown. ]

[0013] R1 in the aforementioned general formula (I) And R2 Even if it is a hydrogen atom or the hydrocarbon group (however, the part or all the hydrogen atoms of these hydrocarbon groups may be replaced by the halogen atom.) of carbon numbers 1-20 and is a single basis in the whole copolymer, you may consist of two or more bases independently, respectively. As the example, the Kiesel machine, a phenyl group, a naphthyl group, an allyl group, a vinyl group, a chloro methyl group, 3 and 3, 3-truffe RUORO propyl group, a perfluoro butyl, a perfluoro octyl machine, etc. are mentioned to a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl machine, n-butyl, a tert-butyl, n-pentyl machine, and n-. A methyl group and a phenyl group are [ among these ] desirable.

[0014] R3 in the aforementioned general formula (I) The divalent hydrocarbon group of carbon numbers 1-20 (However, the part or all the hydrogen atoms of a hydrocarbon group may be replaced by the halogen atom.) Or the basis expressed with -R5-X-R6- (however, R5 and R6 show a divalent aromatic-hydrocarbon machine, and the hydrogen atom of an aromatic ring may be replaced by the halogen atom, the hydrocarbon group, the alkoxy group, or the phenoxy machine.) moreover, X shows the divalent hydrocarbon group of single bond, -O-, -S-, -SO-, -SO2-, -CO-, and carbon numbers 1-20 it is -- even if it is a single basis in the whole copolymer, you may consist of two or more bases

[0015] As the example, 2 and 2-screw (4-hydroxyphenyl) propane (alias : bisphenol A), Screw (4-hydroxyphenyl) methane, 1, and 1-screw (4-hydroxyphenyl) - 3, 3, a 5-trimethyl cyclohexane (alias : bisphenol TMC), Screw (4-hydroxy-3, 5-dimethylphenyl) methane, screw (4-hydroxy-3, 5-dichlorophenyl) methane, 1 and 1-screw (4-hydroxyphenyl) cyclohexyl methane, 1, and 1-screw (4-hydroxyphenyl) ethane, A 1 and 1-screw (4-hydroxyphenyl)-1-phenyl ethane, 4, and 4'-dihydroxy diphenyl ether, The screw (4-hydroxy-3, 5-dimethylphenyl) ether, a screw (4-hydroxyphenyl) sulfone, A screw (4-hydroxy-3, 5-dimethylphenyl) sulfone, 4, and 4'-dihydroxy benzophenone, 2 and 2-screw (4-hydroxy-3, 5-dimethylphenyl) propane, Tetrabromobisphenol A, tetrapod chloro bisphenol A, dihydroxydiphenyl, Hydroquinone, a resorcinol, dihydroxy naphthalene, a dihydroxy anthracene, Phenolphthalein, FERUORESEIN, 2, and 2'-dihydroxy -1, 1-dinaphthyl methane, The basis which originates in alicyclic diols, such as Korean geisha dimethanol, to aliphatic diols, such as aromatic diols, such as 4 and 4'-dihydroxy dinaphthyl, ethylene glycol, a propylene glycol, a butylene glycol, and a hexylene glycol, and cyclo is mentioned. The basis originating in bisphenol A and Bisphenol TMC is [ among these ] desirable.

[0016] R4 in the aforementioned general formula (I) The divalent hydrocarbon group of carbon numbers 1-20 (However, the part or all the hydrogen atoms of a hydrocarbon group may be replaced by the halogen atom.) Or the basis expressed with -R5-X-R6- (however, R5 and R6 show a divalent aromatic-hydrocarbon machine, and the hydrogen atom of an aromatic ring may be replaced by the halogen atom, the hydrocarbon group, the alkoxy group, or the phenoxy machine.) moreover, X shows the divalent hydrocarbon group of single bond, -O-, -S-, -SO-, -SO2-, -CO-, and carbon numbers 1-20 it is -- even if it is a single basis in the whole copolymer, you may consist of two or more bases

[0017] As the example, a terephthalic acid, an isophthalic acid, a phthalic acid, a diphenyl ether -4, a 4'-dicarboxylic acid, A benzophenone -4, 4-dicarboxylic acid, 1, 4-naphthalene dicarboxylic acid, 1, 5-naphthalene dicarboxylic acid, 2, 6-naphthalene dicarboxylic acid, Aromatic dicarboxylic acids, such as 2 and 7-naphthalene dicarboxylic acid, oxalic acid, Aliphatic dicarboxylic acids, such as a malonic acid, a succinic acid, and a glutaric acid, 1, 4-cyclohexane dicarboxylic acid, 1, 3-cyclohexane dicarboxylic acid, 1, 2-cyclohexane dicarboxylic acid, The basis originating in alicyclic dicarboxylic acids, such as 1, 4-decahydronaphthalene dicarboxylic-acid, 1, 5-decahydronaphthalene dicarboxylic-acid, 2, 6-decahydronaphthalene dicarboxylic-acid, 2, and 7-decahydronaphthalene dicarboxylic acid, is

mentioned. The basis originating in a terephthalic acid and an isophthalic acid is [ among these ] desirable.

[0018] 1 or 2b of a in the aforementioned general formula (I) is 0 or 1. If a becomes larger than 2, it will become a block copolymer and compatibility with an organic polymer will fall. Moreover, l, m, and n are one or more positive integers, respectively. Although especially the upper limit of l, m, and n is not restricted, about 400 are desirable respectively from the point of the moldability of a constituent.

[0019] The siloxane system copolymer of this invention can be manufactured by the well-known polymerization method, for example, melt polycondensation, solution polycondensation, and interfacial polycondensation, although especially the manufacture method is not limited. The method to which a carboxylic-acid diester and a siloxane compound are made to react especially in these a polycarbonate, the method to which a carboxylic-acid diester and a siloxane compound are made to react if needed, a diol, dicarbonate, and if needed is desirable. the siloxane system copolymer of this invention is suitable as a flame retarder in a resin constituent -- amount content is carried out Although there is especially no limit in a content, it 0.5 - 50 % of the weight usually contains five to 30% of the weight more preferably one to 30% of the weight. At less than 0.5 % of the weight, if the fire-resistant grant effect is not enough and exceeds 50 % of the weight, the fall of physical properties, such as a mechanical characteristic and thermal resistance, will become large. the weight average molecular weight of the siloxane system copolymer of this invention -- desirable -- 2000-100000 -- it is 2000-10000 more preferably The fall of the mechanical property of a constituent is large, and in exceeding 100000, there is an inclination for the moldability of a constituent to fall in the case of less than 2000.

[0020] A well-known organic polymer can be used as an organic polymer which is the component (B) of this invention. Thermoplastics, thermosetting resin, an elastomer, etc. are mentioned as this organic polymer. For example, polydiens, such as a polybutadiene and a polyisoprene, polyethylene, The poly alkenes, such as polypropylene and a polyisobutylene, a polyacrylic acid, Poly (meta) acrylate, such as a polymethylmethacrylate and poly butyl acrylate Copolymers, such as an acrylic-acid (ester) monomer, a styrene system monomer, and an acrylic nitril system monomer, (Meta) Polyacrylamides, such as a polyacrylamide, and polyvinyl ethers Polyvinyl halide, such as polyvinyl alcohol and a polyvinyl chloride, Polystyrene, such as polyvinyl ester and polystyrene, a polyoxymethylene, Polyamides, such as the poly oxides, such as polyoxypropylene, nylon 6, nylon 6, and 6 The poly imines, polyacetals, polyaramides, and polycarbonates A polyethylene terephthalate, a polybutylene terephthalate, a polyarylate, Polyester, such as a polyester system liquid crystal polymer, and polyurethane A polyphenylene ether, a polyphenylene sulfide, a polysulfone, Polyether sulphone, polyether imide, a polyamidoimide, a polyimide, A polyether ether ketone, a polysiloxane, an ethylene propylene rubber, The denaturation polyolefines which carried out the graft of the polar group by the ethylene-propylene-diene system monomer copolymer, the maleic anhydride, glycidyl methacrylate, etc. An acrylic elastomer, an acrylonitrile-styrene-butadiene-rubber system copolymer, The denaturation styrene thermoplastic elastomer which carried out the graft of the polar group by the maleic anhydride, glycidyl methacrylate, etc., phenol resin, epoxy resins, and unsaturated polyester resins are mentioned. In these, thermoplastics is desirable in respect of compatibility with a siloxane system copolymer.

[0021] Furthermore, the alloy of a polyethylene terephthalate, a polybutylene terephthalate, a polycarbonate, a polyphenylene ether, an acrylonitrile-styrene-butadiene-rubber system copolymer, a polycarbonate, the alloy of acrylonitrile-butadiene-styrene copolymer and a polycarbonate, and a polyethylene terephthalate, the alloy of a polyphenylene ether and polystyrene, etc. are desirable.

[0022] The siloxane system copolymer (A) of this invention may be used to a these organic polymers (B) independent, and may be used to two or more sorts of blend objects of an organic polymer (B). Moreover, to these organic polymers, you may add a filler, a plasticizer, etc. if needed.

[0023] In this invention, other well-known flame retarders can be further used as a component (C). As an example of the above-mentioned flame retarder, chlorinated paraffin, a chlorinated polyethylene, A par chloro cyclo pentadecane (trade name : DEKURO lamp lath), tetrapod chloro phthalic anhydride, Chlorine-based flame retarders, such as a chlorendic acid and chlorendic anhydride, deca BUROMO

diphenyloxide, Tetrabromobisphenol A (alias : TBA), tetrabromo phthalate, Tetrabromo phthalate ester, tetrabromo free-wheel-plate RETOJI sodium, Tribromophenol, dibromophenol, dibromo meta-cresol, Poly (pentabromobenzyl acrylics), pen tableau MOFE Norian, BUROMO phenoxyethanol, a novolak type bromination phenol, dibromo cresyl glycidyl ether, Bromination aromatic triazine, a vinyl star's picture, a TBA-screw (2-hydroxy ethyl ether), A TBA-screw (2, 3-dibromopropyl ether), a TBA-screw (allyl-compound ether), TBA epoxy oligomer, TBA carbonate oligomer, the TORIBUROMO phenyl allyl-compound ether, TORIBUROMO neopentyl alcohol, screw (2, 4, 6-TORIBUROMO phenoxy) ethane, The poly dibromo phenylene ether, a tetrabromo cyclooctane, bromination polystyrene, An ethylene screw tetrabromo phthalimide, ethylene screw PENTABUROMO diphenyl, A hexa BUROMO cyclo dodecane, hexabromobenzene, octave ROMOJI phenyl oxide, Dibromo styrene, tris (2, 3-dibromopropyl) isocyanurate, Bromine system flame retarders, such as the tetrabromo bisphenol S and a pen tableau mottle en, Triphenyl phosphate, tricresyl phosphate, trixylenyl phosphate, Trimethyl phosphate, triethyl phosphate, cresyl diphenyl phosphate, Xylenyl diphenyl phosphate, resorcinol screw (diphenyl) phosphate, 2-ethylhexyl phosphate, dimethyl methyl phosphate, triaryl phosphate, Phosphoric ester system flame retarders, such as aromatic phosphoric ester, tris (chloro ethyl) phosphate, Tris dichloro propyl phosphate, TORISU beta-chloropropyl phosphate, Chloro alkyl phosphate, tris (TORIBUROMO neopentyl) phosphate, Diethyl - N and N-screw (2-hydroxyethyl) aminomethyl phosphate, \*\* halogen phosphoric ester system flame retarders, such as tris (2, 6-dimethylphenyl) phosphate, Condensation phosphoric ester system flame retarders, such as aromatic condensation phosphoric ester and \*\* halogen condensation phosphoric ester, Polyphosphate system flame retarders, such as an ammonium polyphosphate, a polyphosphoric acid amide, and poly chloro HOSUFONETO, Red phosphorus, an aluminum hydroxide, an antimony trioxide, antimony pentoxide, Antimonic-acid soda, a magnesium hydroxide, boric-acid zinc, a zirconium compound, Metal salt system flame retarders, such as inorganic system flame retarders, such as a molybdenum compound and a tin system compound, a guanidine system flame retarder, a melamine system flame retarder, a sulfonic-acid metal salt, a carboxylic-acid metal salt, and a perfluoro alkane sulfonic-acid metal salt, etc. are mentioned. These are independent, or are combined two or more sorts and used. As for the content of a component (C), the 0.1 - 300 weight section and an amount desirable and suitable from the 0.1 - 200 weight section are usually chosen to a component (A) and a total of 100 weights sections of (B). Under in the 0.1 weight section, if the fire-resistant disposition top effect is not fully demonstrated and the 300 weight sections are exceeded, physical properties, such as a mechanical characteristic and thermal resistance, will fall.

[0024] In this invention, other well-known dripping inhibitors can be further used as a component (D). Here, a dripping inhibitor is added in order to prevent melting fall of the organic polymer at the time of combustion, and a polytetrafluoroethylene is specifically illustrated. the content of a component (D) -- usually -- a component (A) and a total of 100 weights sections of (B) -- receiving -- 0.001 - 5 weight section -- it is 0.01 - 1 weight section preferably Under in the 0.001 weight section, if the dripping prevention effect is not fully demonstrated and 5 weight sections are exceeded, physical properties, such as a mechanical characteristic and thermal resistance, will fall. There is especially no limit in the method of preparation of the flame-retardant-resin constituent of this invention, for example, each above-mentioned component is blended, and it is prepared by carrying out melting kneading by the twin screw extruder etc.

[0025] As the above-mentioned additive which can blend various kinds of additives if needed, an antioxidant, an ultraviolet ray absorbent, lubricant, a plasticizer, a color, a pigment, a bulking agent, reinforcing materials (for example, a glass fiber, a carbon fiber), or other assistants are mentioned to the flame-retardant-resin constituent of this invention, and these are independent, or they are combined two or more sorts and used. The addition is suitably determined according to the use made into the purpose. Moreover, any the time of a polymerization and after a polymerization are sufficient also as the timing of addition before a polymerization. The flame-retardant-resin constituent of this invention may be used for manufactures, such as plastics, a film, fiber, adhesives, a paint, and an extrusion sheet.

[0026] The flame-retardant-resin constituent of this invention is suitable for the goods with which the

outstanding fire retardancy and outstanding fabricating-operation nature, a mold-release characteristic, and surface slippage are used, and still higher thermal resistance, toughness, adding-water-proof resolvability, a mechanical characteristic, etc. are searched for. For example, it is suitable for especially the goods in an electric field, a lighting field, and an automobile field. Specifically, although the copolymer of this invention may be used for autoparts, such as lighting part material, such as electrical and electric equipment and electronic-parts material, such as a relay case, a switch, a connector, covering, and housing material, a lamp shade, and a lens, a headlight lens, an inner cap, and a reflector, of course, it is not limited to these.

[0027] The siloxane system copolymer of this invention has siloxane structure at random, and it can realize high fire retardancy, maintaining the mechanical property of an organic polymer, and thermal resistance, since excelling in compatibility with an organic polymer and itself were the copolymers excellent in fire retardancy and the mechanical characteristic. A block copolymer has a limitation in the rate of siloxane introduction to it, and since the fall of the mechanical property by phase separation is not avoided as mentioned above, it has the difficulty that fire retardancy does not improve so much. Therefore, at a fire-resistant point, it can be said that the siloxane system random copolymer of this invention is excellent compared with a block copolymer.

[0028]

[Example] Although an example explains this invention still more concretely hereafter, in the range which does not receive a limit at all by these and does not change the summary, change implementation is possible for this invention suitably. In addition, the property of polymer was measured according to the method shown below.

(1) After adding the sodium carbonate and the calcium carbonate after heating with the sulfuric acid and heat-treating the silicon (Si) atom content polymer of polymer with an electric furnace, the fixed quantity was carried out by ICP (Inductively Coupled Plasma) emission spectrochemical analysis.

(2) After pelletizing the fire-resistant UL examination polymer of polymer, the test piece of 1/8 inch \*\* was created with injection molding, and what carried out reduced pressure drying at 120 degrees C for 15 hours was evaluated according to UL-94V specification.

After pelletizing the measurement polymer of a limiting oxygen index, the test piece was created with injection molding and what carried out reduced pressure drying at 120 degrees C for 15 hours was evaluated according to JISK7201 specification.

(3) Viewing estimated fuming [ at the time of combustion of the fuming polymer at the time of polymer combustion ].

(4) Tractive characteristics of polymer (yield strength, elongation after fracture)

Shimadzu autograph AG-1000C is used and it is ASTM. According to D638, it measured by speed-of-testing 10 mm/min.

[0029] The example 1 of manufacture: The synthetic impeller, the nitrogen inlet, cooling pipe, and distillate mouth of the siloxane system copolymer A1. In the reaction container of content volume 14L which it had, the 1271g (five mols of repeat units) dry polycarbonate (Teijin Chemicals bread-making light L-1250 W), A 486g (2.5 mols) dimethyl terephthalate, a 486g (2.5 mols) isophthalic-acid dimethyl, After it taught 360g (3.0 mols) dimethoxy dimethylsilane and the 585mg (1.7 millimole) dibutyltin diacetate and super-high grade nitrogen performed the deaeration (60Pa)-nitrogen purge 3 times, heating was started under super-high grade nitrogen-gas-atmosphere mind. At 280 degree C of inside \*\*, after 1-hour churning, inside \*\* was raised to 300 degrees C, and distilling off of the dimethyl carbonate which carries out a byproduction was started. Inside \*\* was raised at 320 degrees C 2 hours after, and churning was continued under reduced pressure (26Pa) for 2 hours. The obtained polymer was dissolved in the methylene chloride and it refined by supplying in a lot of hexanes and reprecipitating polymer. The obtained polymer was a polyester-siloxane copolymer, the silicon (Si) atom content was 3.5 % of the weight, and weight average molecular weight was 32000.

[0030] The example 2 of manufacture: Instead of the synthetic polycarbonate of the siloxane system copolymer A2, 1140g (5.0 mols) bisphenol A was used, and it carried out like the example 1 of

manufacture instead of the dimethyl terephthalate and the isophthalic-acid dimethyl except having used 450g dimethyl carbonate. The obtained polymer was a polycarbonate-siloxane copolymer, the silicon (Si) atom content was 3.8 % of the weight, and weight average molecular weight was 38000.

[0031] 30 weight sections addition was carried out to the polycarbonate resin (Teijin Chemicals bread-making light L-1250) 100 weight section of marketing of the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example 1 manufacture, melting kneading was carried out by the twin screw extruder (the Japan Steel Works make, LABOTEX), and the pellet-like resin constituent was obtained. Using this, the 1/8 inch test piece was created with injection molding, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 1. Moreover, the result which measured mechanical strength is shown in Table 2.

[0032] Except having used the siloxane system copolymer A2 obtained in the example 2 of manufacture instead of the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example 2 manufacture, it carried out like the example 1, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 1.

[0033] Except having added the epoxy oligomer 10 weight section of TBA further as example 3 flame retarder, it carried out like the example 1, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 1.

[0034] Except having added the polytetrafluoroethylene 1 weight section further as an example 4 dripping inhibitor, it carried out like the example 1, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 1.

[0035] Except having made into 5 weight sections the amount of the siloxane system copolymer A1 used obtained in the example 1 of example 5 manufacture, it carried out like the example 1, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 1.

[0036] Except having not used the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example of comparison 1 manufacture, it carried out like the example 1, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 1. Moreover, the result which measured mechanical strength is shown in Table 2.

[0037] Except having not used the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example of comparison 2 manufacture, it carried out like the example 3, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 1.

[0038]

[Table 1]

	組 成 (重量部)				物 性		
	A	B	C	D	難燃性		発煙性
					UL規格評価	限界酸素指数 (%)	
実施例	1	A1 30	PC 100	—	V-0	29.7	少ない
	2	A2 30	"	—	V-0	30.6	少ない
	3	A1 30	" 10	—	V-0	36.3	多い
	4	" 30	"	1	V-0	29.5	少ない
	5	A1 5	"	—	V-2	26.7	少ない
比較例	1	"	"	—	not V	25.2	少ない
	2	—	" 10	—	V-0	32.0	非常に多い

A -- 1: siloxane system copolymer A1 B-2: siloxane system copolymer A2PC: -- polycarbonate resin  
Panlight L-1250 Epoxy oligomer of C: TBA D: -- polytetrafluoroethylene [0039]

[Table 2]

	降伏強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	破断伸び (%)
実施例 1	6 4 1	8 1
比較例 1	6 1 4	9 4

[0040] 30 weight sections addition was carried out to the polyethylene-terephthalate resin (bell pet EFG[ by Kanebo, Ltd. ]- 7) 100 weight section of marketing of the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example 6 manufacture, melting kneading was carried out by the twin screw extruder (the Japan Steel Works make, LABOTEX), and the pellet-like resin constituent was obtained. Using this, the 1/8 inch test piece was created with injection molding, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 3.

[0041] Except having not used the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example of comparison 3 manufacture, it carried out like the example 5, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 3.

[0042]

[Table 3]

	組 成 (重量部)		物 性
	A	B	難燃性 限界酸素指数 (%)
実施例 6	A1 30	PET 100	2 3 . 8
比較例 3	---	"	2 2 . 6

A1: Siloxane system copolymer A1PET: Polyethylene-terephthalate resin Bell pet EFG-7. [0043] 30 weight sections addition was carried out to the polybutyrene-terephthalate-resin (Polyplastics Jura NEKKUSU 2002) 100 weight section of marketing of the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example 7 manufacture, melting kneading was carried out by the twin screw extruder (the Japan Steel Works make, LABOTEX), and the pellet-like resin constituent was obtained. Using this, the 1/8 inch test piece was created with injection molding, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 4.

[0044] Except having not used the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example of comparison 4 manufacture, it carried out like the example 5, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 4.

[0045]

[Table 4]

	組 成 (重量部)		物 性
	A	B	
			難燃性 限界酸素指数 (%)
実施例 7	A1 30	PBT 100	22.0
比較例 4	—	"	21.5

A1: siloxane system copolymer A1PBT: -- polybutyrene terephthalate resin Jura NEKKUSU 2002. [0046] 30 weight sections addition was carried out to the polycarbonate resin (Teijin Chemicals bread-making light L-1250) 70 weight section of marketing of the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example 8 manufacture, and the acrylic nitril-Butadiene-Styrene (ABS12 by Japan Synthetic Rubber Co., Ltd.) 30 weight section, melting kneading was carried out by the twin screw extruder (the Japan Steel Works make, LABOTEX), and the pellet-like resin constituent was obtained. Using this, the 1/8 inch test piece was created with injection molding, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 5.

[0047] Except having not used the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example of comparison 5 manufacture, it carried out like the example 7, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 5.

[0048]

[Table 5]

	組 成 (重量部)		物 性
	A	B	
			難燃性 限界酸素指数 (%)
実施例 8	A1 30	PC 70 ABS 30	26.4
比較例 5	—	"	24.2

A1: Siloxane system copolymer A1PC: Polycarbonate resin Panlight L-1250ABS: ABS plastics ABS12.

[0049] 30 weight sections addition was carried out to the polycarbonate resin (Teijin Chemicals bread-making light L-1250) 70 weight section of marketing of the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example 9 manufacture, and the polyethylene-terephthalate resin (bell pet EFG[ by Kanebo, Ltd. ]- 7) 30 weight section, melting kneading was carried out by the twin screw extruder (the Japan Steel Works make, LABOTEX), and the pellet-like resin constituent was obtained. Using this, the 1/8 inch test piece was created with injection molding, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 6.

[0050] Except having not used the siloxane system copolymer A1 obtained in the example 1 of example of comparison 6 manufacture, it carried out like the example 8, the test piece was created, and fire retardancy was evaluated. A result is shown in Table 6.

[0051]

[Table 6]

	組 成 (重量部)		物 性
	A	B	
			難燃性 限界酸素指数 (%)
実施例 9	A1 30	PC 70 PET 30	27.2
比較例 6	—	—	24.4

A1: Siloxane system copolymer A1PC: Polycarbonate resin Panlight L-1250PET:  
Polyethylene-terephthalate resin Bell pet EFG-7. [0052]

[Effect of the Invention] As mentioned above, the flame-retardant-resin constituent of this invention is excellent in especially fire retardancy, maintaining the property which was excellent in the resin itself, such as a mechanical characteristic and thermal resistance. Moreover, especially the flame-retardant-resin constituent of this invention has an effect in suppression of the emitting smoke at the time of combustion.

---

[Translation done.]



(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-168319

(43)公開日 平成10年(1998)6月23日

(51)Int.Cl.<sup>8</sup>

識別記号

F I

C 0 8 L 83/10

C 0 8 L 83/10

C 0 8 K 3/24

C 0 8 K 3/24

3/32

3/32

5/02

5/02

5/521

5/521

審査請求 未請求 請求項の数15 F D (全 11 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号

特願平8-342473

(22)出願日

平成8年(1996)12月5日

(71)出願人 000000941

鐘淵化学工業株式会社

大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号

(72)発明者 日色 知樹

兵庫県神戸市西区玉津町西河原151-203

(72)発明者 青山 泰三

兵庫県高砂市西畑4丁目13-10

(74)代理人 弁理士 伊丹 健次

(54)【発明の名称】 難燃性樹脂組成物

(57)【要約】

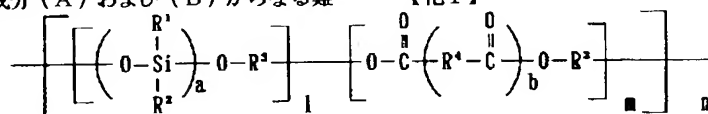
【課題】 安全性が高く、燃焼時の発煙性の少ない、難燃性樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 下記成分 (A) および (B) からなる難

燃性樹脂組成物。

(A) 下記一般式 (I) で示されるシロキサン系共重合体

【化1】



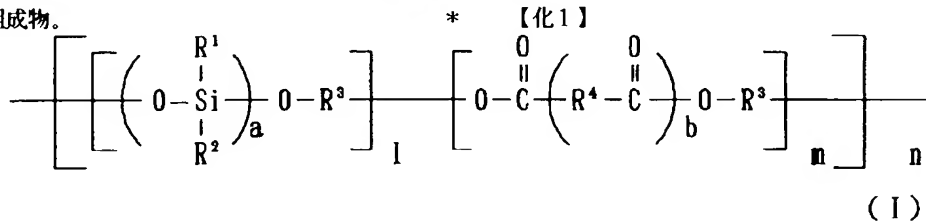
(I)

〔aは1または2、bは0または1、1、m、nは1以上の正の整数、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>は、水素原子または炭素数1～20の炭化水素基、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>は、炭素数1～20の2価の炭化水素基、または-R<sup>5</sup>-X-R<sup>6</sup>-で表され

る基 (ただし、R<sup>5</sup> および R<sup>6</sup> は2価の芳香族炭化水素基、Xは単結合、-O-、-S-、-SO-、-SO<sub>2</sub>-、-CO-、炭素数1～20の2価の炭化水素基) 〕  
(B) 有機重合体。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記成分(A)および(B)からなる難燃性樹脂組成物。



〔式中、aは1または2、bは0または1である。1、m、nはそれぞれ1以上の正の整数である。R<sup>1</sup> および R<sup>2</sup> は、それぞれ水素原子または炭素数1〜20の炭化水素基（ただし、炭化水素基の一部または全部の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。）、R<sup>3</sup> および R<sup>4</sup> は、それぞれ炭素数1〜20の2価の炭化水素基（ただし、炭化水素基の一部または全部の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。）または -R<sup>5</sup>-X-R<sup>6</sup>- で表される基（ただし、R<sup>5</sup> および R<sup>6</sup> は2価の芳香族炭化水素基を示し、芳香族環の水素原子は、ハロゲン原子、炭化水素基、アルコキシ基、またはフェノキシ基で置換されていてもよい。また、Xは単結合、-O-、-S-、-SO-、-SO<sub>2</sub>-、-CO-、炭素数1〜20の2価の炭化水素基を示す。）を示す。〕、(B)有機重合体。

【請求項2】 成分(B)の有機重合体の含有量が0.5〜50重量%である請求項1記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項3】 成分(C)難燃剤をさらに含有してなる請求項1又は2記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項4】 成分(C)の難燃剤の含有量が成分(A)と(B)の合計100重量部に対して0.1〜300重量部である請求項3記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項5】 成分(D)ドリップ防止剤をさらに含有してなる請求項1〜4のいずれか1項に記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項6】 成分(D)のドリップ防止剤の含有量が成分(A)と(B)の合計100重量部に対して0.001〜5重量部である請求項5記載の難燃性樹脂組成物。

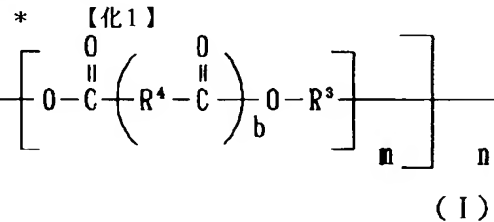
【請求項7】 成分(B)の有機重合体が、熱可塑性樹脂である請求項1〜6のいずれか1項に記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項8】 成分(B)の有機重合体が、ポリエチレンテレフタレートである請求項7記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項9】 成分(B)の有機重合体が、ポリブチレンテレフタレートである請求項7記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項10】 成分(B)の有機重合体が、ポリカーボネートである請求項7記載の難燃性樹脂組成物。

\* (A) 下記一般式(I)で示されるシロキサン系共重合体：



10※【請求項11】 成分(B)の有機重合体が、ポリフェニレンエーテルである請求項7記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項12】 成分(B)の有機重合体が、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン系共重合体である請求項7記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項13】 成分(B)の有機重合体が、ポリカーボネートとアクリロニトリル-ブタジエン-スチレン系共重合体のアロイである請求項7記載の難燃性樹脂組成物。

20【請求項14】 成分(B)の有機重合体が、ポリカーボネートとポリエチレンテレフタレートのアロイである請求項7記載の難燃性樹脂組成物。

【請求項15】 成分(B)の有機重合体が、ポリフェニレンエーテルとポリスチレンのアロイである請求項7記載の難燃性樹脂組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、シロキサン系共重合体を含有してなる難燃性樹脂組成物に関し、さらに詳しくは、安全性が高く、燃焼時の発煙性が少なく、機械物性の低下の少ない難燃性樹脂組成物に関する。

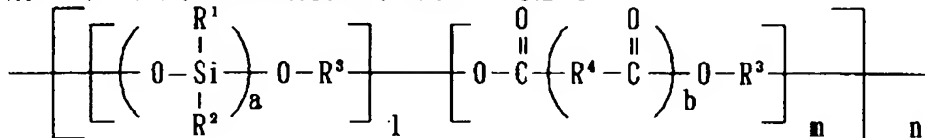
## 【0002】

【従来の技術】有機重合体は、プラスチック、フィルム、繊維、接着剤、塗料、押出シートなどに用いられる有用な工業製品で、一般に、軽量性、耐衝撃性、耐摩耗性、電気絶縁性および成形加工性に優れている。しかし、このような有機重合体は、難燃性に乏しく、しかも燃焼時に有害なガスを生じるなどの欠点を有している。そのため、このような有機重合体を、難燃性を要求される用途に使用する場合には、通常、ハロゲン系に代表される難燃剤を添加することにより難燃化させるのが一般的である。しかし、このようなハロゲン系難燃剤は、難燃剤自体の安全性が問題となるばかりではなく、燃焼時に有害ガスを生じたり、そして添加量によっては機械的強度を低下させるなどの問題点を有している。

【0003】その他の難燃剤としては、リン系の難燃剤や金属水酸化物や金属酸化物が知られている。しかし、これらはいずれも難燃性が十分でなかったり、添加により機械的強度が低下するなどの問題がある。有機重合体の難燃性を向上させる手段として、シロキサン化合物が

注目されている。シロキサン化合物は、安全性が高いことに加え、難燃性向上の効果も高いことが特徴である。しかし、従来提案されている、シリコンオイルやシリコンレジンに添加する方法では、シロキサン化合物と樹脂の相溶性が低い場合には、十分な難燃性向上効果が得られなかったり、シロキサン化合物が表面にブリードするといった問題点がある。

【0004】このような問題点を解決する手段として、シロキサン系共重合体に関する技術が開示されている。例えば、特開平5-262975号公報では、難燃性ポリカーボネート-シロキサンプロック共重合体が開示されている。また、特開平5-222173号公報、特開平7-2999号公報では、ポリエステル（ポリエステルカーボネート）-シロキサンプロック共重合体が開示されている。しかし、これらの公報では、シロキサン系共重合体を難燃剤として利用する技術は開示されていない。さらに、これらのシロキサン系共重合体は、シロキサン部分をブロック的に含有するためシロキサン導入率に限界があり有機重合体との相溶性が乏しく、相分離による機械的特性の低下、難燃性向上効果が不十分という問題がある。Curryらは、ジオールおよびビス（アニリノ）ジフェニルシランから得られるシロキサン系共重合体の合成法を報告している（J. Appl. Polym. Sci., vol. 9, pp. 295 (1965)）。また、Carragher, Jr.らは、ジオールとジクロロジオルガノシランから得られるシロキサン系共重合体の合成法を報告している（J. Polym. Sci., part A-1, vol. 8, pp. 973 (1970)）。これらの方法では、生成\*



(I)

【0009】〔式中、aは1または2、bは0または1である。l、m、nはそれぞれ1以上の正の整数である。R<sup>1</sup> および R<sup>2</sup> は、それぞれ水素原子または炭素数1~20の炭化水素基（ただし、炭化水素基の一部または全部の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。）〕、R<sup>3</sup> および R<sup>4</sup> は、それぞれ炭素数1~20の2価の炭化水素基（ただし、炭化水素基の一部または全部の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。）または-R<sup>5</sup>-X-R<sup>6</sup>-で表される基（ただし、R<sup>5</sup> および R<sup>6</sup> は2価の芳香族炭化水素基を示し、芳香族環の水素原子は、ハロゲン原子、炭化水素基、アルコキシ基、またはフェノキシ基で置換されていてもよ※

\*するポリマーが交互共重合体となるため、シロキサンの導入量を増加させることが可能である。特公平7-15053号公報では、この型のシロキサン系共重合体〔ポリ（アリアルオキシシロキサン）〕と芳香族ポリカーボネートとの難燃性ブレンドが開示されている。しかし、この方法では、ポリ（アリアルオキシシロキサン）のガラス転移点が低く、多量に添加すると有機重合体の耐熱性が低下するという問題がある。

【0005】

10 【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記従来の課題を解決するためになされたものであり、その目的とするところは、安全性が高く、燃焼時の発煙性が少なく、物性の低下が少ない難燃性樹脂組成物を提供することにある。

【0006】

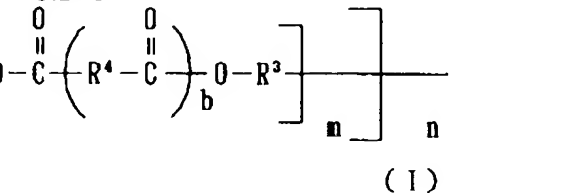
20 【課題を解決するための手段】本発明者らは前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、特定の構造単位を有するシロキサン系共重合体を必須成分とすることにより上記問題点を解決し得ることを見出し、本発明を完成した。

【0007】すなわち、本発明は、下記成分（A）および（B）からなる難燃性樹脂組成物を内容とするものである。

（A）下記一般式（I）で示されるシロキサン系共重合体：

【0008】

〔化2〕



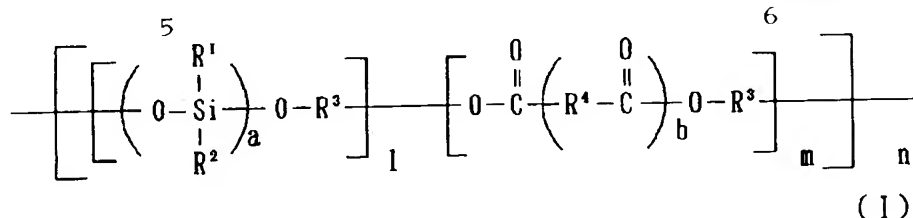
※い。また、Xは単結合、-O-、-S-、-SO-、-SO<sub>2</sub>-、-CO-、炭素数1~20の2価の炭化水素基を示す。）を示す。〕、（B）有機重合体。また、本発明は、上記難燃性樹脂組成物に、さらに成分（C）難燃剤、成分（D）ドリップ防止剤の少なくとも1種を含有してなる難燃性樹脂組成物を内容とする。

40 【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。本発明では、成分（A）として、下記一般式（I）で示されるシロキサン系共重合体を使用される。

【0011】

〔化3〕



【0012】〔式中、aは1または2、bは0または1である。l、m、nはそれぞれ1以上の正の整数である。R<sup>1</sup> およびR<sup>2</sup> は、それぞれ水素原子または炭素数1~20の炭化水素基（ただし、炭化水素基の一部または全部の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。）R<sup>3</sup> およびR<sup>4</sup> は、それぞれ炭素数1~20の2価の炭化水素基（ただし、炭化水素基の一部または全部の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。）または-R<sup>5</sup> -X-R<sup>6</sup> -で表される基（ただし、R<sup>5</sup> およびR<sup>6</sup> は2価の芳香族炭化水素基を示し、芳香族環の水素原子は、ハロゲン原子、炭化水素基、アルコキシ基、またはフェノキシ基で置換されていてもよい。また、Xは単結合、-O-、-S-、-SO-、-SO<sub>2</sub>-、-CO-、炭素数1~20の2価の炭化水素基を示す。）を示す。〕。

【0013】前記一般式（I）におけるR<sup>1</sup> およびR<sup>2</sup> は、それぞれ独立して、水素原子または炭素数1~20の炭化水素基（ただし、これらの炭化水素基の一部または全部の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。）であり、共重合体全体で単一の基であっても、複数の基で構成されていてもよい。その具体例としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、tert-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、フェニル基、ナフチル基、アリル基、ビニル基、クロロメチル基、3,3,3-トリフルオロプロピル基、パーフルオロブチル基、パーフルオロオクチル基などが挙げられる。これらのうち、メチル基、フェニル基が好ましい。

【0014】前記一般式（I）におけるR<sup>3</sup> は、炭素数1~20の2価の炭化水素基（ただし、炭化水素基の一部または全部の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。）または-R<sup>5</sup> -X-R<sup>6</sup> -で表される基（ただし、R<sup>5</sup> およびR<sup>6</sup> は2価の芳香族炭化水素基を示し、芳香族環の水素原子は、ハロゲン原子、炭化水素基、アルコキシ基、またはフェノキシ基で置換されていてもよい。また、Xは単結合、-O-、-S-、-SO-、-SO<sub>2</sub>-、-CO-、炭素数1~20の2価の炭化水素基を示す。）であり、共重合体全体で単一の基であっても、複数の基で構成されていてもよい。

【0015】その具体例としては、2,2-ビス（4-ヒドロキシフェニル）プロパン（別名：ビスフェノールA）、ビス（4-ヒドロキシフェニル）メタン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-3,3,5-トリメチルシクロヘキサノール（別名：ビスフェノールTM

\*C）、ビス（4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルフェニル）メタン、ビス（4-ヒドロキシ-3,5-ジクロロフェニル）メタン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）シクロヘキサノール、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）エタン、1,1-ビス（4-ヒドロキシフェニル）-1-フェニルエタン、4,4'-ジヒドロキシジフェニルエーテル、ビス（4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルフェニル）エーテル、ビス（4-ヒドロキシフェニル）スルホン、ビス（4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルフェニル）スルホン、4,4'-ジヒドロキシベンゾフェノン、2,2-ビス（4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルフェニル）プロパン、テトラプロモビスフェノールA、テトラクロロビスフェノールA、ジヒドロキシジフェニル、ヒドロキノン、レゾルシノール、ジヒドロキシナフタレン、ジヒドロキシアントラセン、フェノールフタレイン、フェルオレセイン、2,2'-ジヒドロキシ-1,1-ジナフチルメタン、4,4'-ジヒドロキシジナフチルなどの芳香族ジオール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブチレングリコール、ヘキシレングリコールなどの脂肪族ジオール、シクロヘキサジメタノールなどの脂環式ジオールに由来する基が挙げられる。これらのうち、ビスフェノールA、ビスフェノールTMCに由来する基が好ましい。

【0016】前記一般式（I）におけるR<sup>4</sup> は、炭素数1~20の2価の炭化水素基（ただし、炭化水素基の一部または全部の水素原子が、ハロゲン原子で置換されていてもよい。）または-R<sup>5</sup> -X-R<sup>6</sup> -で表される基（ただし、R<sup>5</sup> およびR<sup>6</sup> は2価の芳香族炭化水素基を示し、芳香族環の水素原子は、ハロゲン原子、炭化水素基、アルコキシ基、またはフェノキシ基で置換されていてもよい。また、Xは単結合、-O-、-S-、-SO-、-SO<sub>2</sub>-、-CO-、炭素数1~20の2価の炭化水素基を示す。）であり、共重合体全体で単一の基であっても、複数の基で構成されていてもよい。

【0017】その具体例としては、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、ジフェニルエーテル-4,4'-ジカルボン酸、ベンゾフェノン-4,4'-ジカルボン酸、1,4-ナフタレンジカルボン酸、1,5-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸などの芳香族ジカルボン酸、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、などの脂肪族ジカルボン酸、1,4-シクロヘキサジカルボン酸、1,3-シクロヘキサジカルボン酸、1,

2-シクロヘキサジカルボン酸、1, 4-デカヒドロナフタレンジカルボン酸、1, 5-デカヒドロナフタレンジカルボン酸、2, 6-デカヒドロナフタレンジカルボン酸、2, 7-デカヒドロナフタレンジカルボン酸などの脂環式ジカルボン酸に由来する基が挙げられる。これらのうち、テレフタル酸、イソフタル酸に由来する基が好ましい。

【0018】前記一般式(I)におけるaは1または2、bは0または1である。aが2より大きくなると、ブロック共重合体となり有機重合体との相溶性が低下する。また、l、m、nはそれぞれ1以上の正の整数である。l、m、nの上限は特に制限されないが、組成物の成形性の点からそれぞれ400程度が好ましい。

【0019】本発明のシロキサン系共重合体は、その製造方法は特に限定されないが、公知の重合法、例えば、溶融重合、溶液重合、界面重合により製造可能である。これらの中で、特に、ポリカーボネート、必要に応じてカルボン酸ジエステル、シロキサン化合物を反応させる方法、ジオール、ジカーボネート、必要に応じて、カルボン酸ジエステル、シロキサン化合物を反応させる方法が好ましい。本発明のシロキサン系共重合体は、樹脂組成物中に難燃剤として適切な量含有される。含有量に特に制限はないが、通常0.5〜50重量%、好ましくは1〜30重量%、より好ましくは5〜30重量%含有される。0.5重量%未満では難燃性付与効果が十分でなく、また50重量%を越えると機械特性、耐熱性等の物性の低下が大きくなる。本発明のシロキサン系共重合体の重量平均分子量は、好ましくは2000〜100000、より好ましくは2000〜10000である。2000未満の場合には、組成物の機械的物性の低下が大きく、100000を越える場合には、組成物の成形性が低下する傾向がある。

【0020】本発明の成分(B)である有機重合体としては、公知の有機重合体を使用できる。かかる有機重合体としては、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、エラストマーなどが挙げられ、例えば、ポリブタジエン、ポリイソプレンなどのポリジエン類、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリイソブチレンなどのポリアルケン類、ポリアクリル酸、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルアクリレートなどのポリ(メタ)アクリレート類、(メタ)アクリル酸(エステル)モノマーとスチレン系モノマーとアクリロニトリル系モノマーなどの共重合体、ポリアクリルアミドなどのポリアクリルアミド類、ポリビニルエーテル類、ポリビニルアルコール類、ポリ塩化ビニルなどのポリビニルハライド、ポリビニルエステル類、ポリスチレンなどのポリスチレン類、ポリオキシメチレン、ポリオキシプロピレンなどのポリオキシド類、ナイロン6、ナイロン6, 6などのポリアミド類、ポリイミン類、ポリアセタール類、ポリアラミド類、ポリカーボネート類、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレン

テレフタレート、ポリアリレート、ポリエステル系液晶ポリマーなどのポリエステル類、ポリウレタン類、ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルイミド、ポリアミドイミド、ポリイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリシロキサン、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-プロピレン-ジエン系モノマー共重合体、無水マレイン酸やグリシジルメタクリレートなどで極性基をグラフトした変性ポリオレフィン類、アクリル系エラストマー、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン系共重合体、無水マレイン酸やグリシジルメタクリレートなどで極性基をグラフトした変性スチレン系熱可塑性エラストマー、フェノール樹脂類、エポキシ樹脂類、不飽和ポリエステル樹脂類が挙げられる。これらの中で、シロキサン系共重合体との相溶性の点で熱可塑性樹脂が好ましい。

【0021】さらに、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン系共重合体、ポリカーボネートとアクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体のアロイ、ポリカーボネートとポリエチレンテレフタレートのアロイ、ポリフェニレンエーテルとポリスチレンのアロイなどが好ましい。

【0022】本発明のシロキサン系共重合体(A)は、これらの有機重合体(B)単独に対して使用してもよいし、有機重合体(B)の2種以上のブレンド物に対して使用してもよい。また、これらの有機重合体には、必要に応じて、充填材、可塑剤などを添加してもよい。

【0023】本発明においては、成分(C)として、さらに他の公知の難燃剤を使用することができる。上記難燃剤の具体例としては、塩素化パラフィン、塩素化ポリエチレン、パークロシクロペンタデカン(商品名:デクロランプラス)、テトラクロロ無水フタル酸、クロレンド酸、無水クロレンド酸などの塩素系難燃剤、デカブロモジフェニルオキシサイド、テトラブロモビスフェノールA(別名:TBA)、テトラブロモフタレート、テトラブロモフタレートエステル、テトラブロモフタレートジソジウム、トリブロモフェノール、ジブロモフェノール、ジブロモメタクレゾール、ポリ(ペンタブロモベンジルポリアクリレート)、ペンタブロモフェノール、ブロモフェノキシエタノール、ノボラック型臭素化フェノール、ジブロモクレジルグリシジルエーテル、臭素化芳香族トリアジン、ビニルプロマイド、TBA-ビス(2-ヒドロキシエチルエーテル)、TBA-ビス(2, 3-ジブロモプロピルエーテル)、TBA-ビス(アリルエーテル)、TBAエポキシオリゴマー、TBAカーボネートオリゴマー、トリブロモフェニルアリルエーテル、トリブロモネオペンチルアルコール、ビス(2, 4, 6-トリブロモフェノキシ)エタン、ポリジブロモ

フェニレンエーテル、テトラブロモシクロオクタン、臭素化ポリスチレン、エチレンビステトラブロモフタルイミド、エチレンビスペンタブロモジフェニル、ヘキサブロモシクロデカン、ヘキサブロモベンゼン、オクタブロモジフェニルオキサイド、ジブロモスチレン、トリス(2,3-ジブロモプロピル)イソシアヌレート、テトラブロモビスフェノールS、ペンタブロモトルエンなどの臭素系難燃剤、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、トリメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、キシレニルジフェニルホスフェート、レゾルシノールビス(ジフェニル)ホスフェート、2-エチルヘキシルホスフェート、ジメチルメチルホスフェート、トリアリルホスフェート、芳香族リン酸エステルなどのリン酸エステル系難燃剤、トリス(クロロエチル)ホスフェート、トリシクロロプロピルホスフェート、トリス- $\beta$ -クロロプロピルホスフェート、クロロアルキルホスフェート、トリス(トリプロモネオペンチル)ホスフェート、ジエチル-N, N-ビス(2-ヒドロキシエチル)アミノメチルホスフェート、トリス(2,6-ジメチルフェニル)ホスフェートなどの含ハロゲンリン酸エステル系難燃剤、芳香族縮合リン酸エステル、含ハロゲン縮合リン酸エステルなどの縮合リン酸エステル系難燃剤、ポリリン酸アンモニウム、ポリリン酸アミド、ポリクロロホスフォネートなどのポリリン酸塩系難燃剤、赤燐、水酸化アルミニウム、三酸化アンチモン、五酸化アンチモン、アンチモン酸ソーダ、水酸化マグネシウム、ホウ酸亜鉛、ジルコニウム化合物、モリブデン化合物、スズ系化合物などの無機系難燃剤、グアニジン系難燃剤、メラミン系難燃剤、スルホン酸金属塩、カルボン酸金属塩、パーフルオロアルカン

スルホン酸金属塩などの金属塩系難燃剤などが挙げられる。これらは単独でまたは2種以上組み合わせて用いられる。成分(C)の含有量は通常、成分(A)と(B)の合計100重量部に対して0.1~300重量部、好ましくは0.1~200重量部から適当な量が選ばれる。0.1重量部未満では難燃性向上効果が十分に発揮されず、また300重量部を越えると機械特性、耐熱性等の物性が低下する。

【0024】本発明においては、成分(D)として、さらに他の公知のドリップ防止剤を使用することができる。ここで、ドリップ防止剤とは、燃焼時の有機重合体の溶融落下を防止する目的で添加されるもので、具体的にはポリテトラフルオロエチレンが例示される。成分(D)の含有量は通常、成分(A)と(B)の合計100重量部に対して0.001~5重量部、好ましくは0.01~1重量部である。0.001重量部未満ではドリップ防止効果が十分に発揮されず、また5重量部を越えると機械特性、耐熱性等の物性が低下する。本発明の難燃性樹脂組成物の調製法には特に制限はな

く、例えば、上記各成分を配合し、二軸押出機等で溶融混練することにより調製される。

【0025】本発明の難燃性樹脂組成物には必要に応じて各種の添加剤を配合することができる上記添加剤としては、酸化防止剤、紫外線吸収剤、滑剤、可塑剤、染料、顔料、充填剤、補強材(例えば、ガラス繊維、炭素繊維)、あるいはその他の助剤が挙げられ、これらは単独でまたは2種以上組み合わせて用いられる。その添加量は、目的とする用途に応じて適宜決定される。また、添加のタイミングも、重合前、重合時、および、重合後のいずれでもよい。本発明の難燃性樹脂組成物は、プラスチック、フィルム、繊維、接着剤、塗料、押出シートなどの製造のために使用され得る。

【0026】本発明の難燃性樹脂組成物は、優れた難燃性、成形加工性、離型性および表面滑性を利用し、さらに高い耐熱性、強靱性、耐加水分解性、機械特性などが求められる物品に好適である。例えば、電気分野、照明分野、および自動車分野における物品に特に好適である。具体的には、本発明の共重合体は、リレーケース、スイッチ、コネクタ、カバー、ハウジング材などの電気・電子部品材料、ランプシェード、レンズなどの照明部品材料、ヘッドライトレンズ、インナーキャップ、リフレクターなどの自動車部品に利用され得るが、勿論これらに限定されるものではない。

【0027】本発明のシロキサン系共重合体は、シロキサン構造をランダムに有しており、有機重合体との相溶性に優れること、それ自身が難燃性および機械特性に優れた共重合体であることから、有機重合体の機械的特性および耐熱性を維持したまま高い難燃性を実現できる。それに対して、ブロック共重合体は、シロキサン導入率に限界があり、前述のように相分離による機械的特性の低下が避けられないため、難燃性がそれほど向上しないという難点を有する。従って、難燃性の点では、本発明のシロキサン系ランダム共重合体は、ブロック共重合体に比べて優れていると言える。

【0028】

【実施例】以下、実施例により本発明を更に具体的に説明するが、本発明はこれらにより何ら制限を受けるものではなく、その要旨を変更しない範囲において、適宜変更実施可能である。なお、ポリマーの特性は次に示す方法に従って測定した。

(1) ポリマーのケイ素(Si)原子含有量

ポリマーを硫酸で加熱後、炭酸ナトリウムおよび炭酸カルシウムを加え、そして電気炉で加熱処理した後、ICP(Inductively Coupled Plasma)発光分光分析法により定量した。

(2) ポリマーの難燃性

UL規格試験

ポリマーをベレット化した後、120℃で15時間減圧乾燥したものを、射出成形により1/8インチ厚の試験

10

20

30

40

50

片を作成し、UL-94V規格に従って評価した。

#### 限界酸素指数の測定

ポリマーをペレット化した後、120℃で15時間減圧乾燥したものを、射出成形により試験片を作成し、JISK7201規格に従って評価した。

#### (3) ポリマー燃焼時の発煙性

ポリマーの燃焼時の発煙性を目視にて評価した。

#### (4) ポリマーの引張特性(降伏強度、破断伸び)

島津製作所製オートグラフAG-1000Cを用い、ASTM D638に従い、引張速度10mm/minで10

測定した。

【0029】製造例1: シロキサン系共重合体A1の合成

攪拌翼、窒素導入口、冷却管、および留出口を備えた内容積14Lの反応容器に、1271g(繰返し単位5モル)の乾燥したポリカーボネート(帝人化成(株)製バンライトL-1250W)、486g(2.5モル)のテレフタル酸ジメチル、486g(2.5モル)のイソフタル酸ジメチル、360g(3.0モル)のジメトキシジメチルシラン、585mg(1.7ミリモル)のジブチルスズジアセテートを仕込み、超高純度窒素にて脱気(60Pa)-窒素パージを3回行った後、超高純度窒素雰囲気下で、加熱を開始した。内温280℃で1時間攪拌後、内温を300℃まで上昇させ、副生するジメチルカーボネートの留去を開始した。2時間後、内温を320℃に上昇させ、減圧(26Pa)下、2時間攪拌を続けた。得られたポリマーを塩化メチレンに溶解し、大量のヘキサン中に投入してポリマーを再沈させることにより精製した。得られたポリマーはポリエステル-シロキサン共重合体であり、ケイ素(Si)原子含有量は3.5重量%、重量平均分子量は32000であった。

【0030】製造例2: シロキサン系共重合体A2の合成

ポリカーボネートの代わりに、1140g(5.0モル)のビスフェノールAを用い、テレフタル酸ジメチルおよびイソフタル酸ジメチルの代わりに、450gのジメチルカーボネートを用いた以外は、製造例1と同様に行った。得られたポリマーはポリカーボネート-シロキサン共重合体であり、ケイ素(Si)原子含有量は3.

8重量%、重量平均分子量は38000であった。

#### 【0031】実施例1

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を市販のポリカーボネート樹脂(帝人化成(株)製バンライトL-1250)100重量部に対して30重量部添加し、二軸押出機(日本製鋼所製、LABOTEX)で溶融混練し、ペレット状の樹脂組成物を得た。これを用い、射出成形により1/8インチ試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表1に示す。また、機械強度を測定した結果を表2に示す。

#### 【0032】実施例2

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1の代わりに製造例2で得られたシロキサン系共重合体A2を使用した以外は実施例1と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表1に示す。

#### 【0033】実施例3

難燃剤としてTBAのエポキシオリゴマー10重量部をさらに添加した以外は実施例1と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表1に示す。

#### 【0034】実施例4

ドリップ防止剤としてポリテトラフルオロエチレン1重量部をさらに添加した以外は実施例1と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表1に示す。

#### 【0035】実施例5

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1の使用量を5重量部とした以外は実施例1と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表1に示す。

#### 【0036】比較例1

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を使用しなかった以外は、実施例1と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表1に示す。また、機械強度を測定した結果を表2に示す。

#### 【0037】比較例2

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を使用しなかった以外は、実施例3と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表1に示す。

#### 【0038】

【表1】

		組 成 (重量部)				物 性		
		A	B	C	D	難燃性 UL規格評価	発煙性 限界酸素指数 (%)	
実 施 例	1	A1 30	PC 100	—	—	V-0	29.7	少ない
	2	A2 30	"	—	—	V-0	30.6	少ない
	3	A1 30	"	10	—	V-0	36.3	多い
	4	"	"	—	1	V-0	29.5	少ない
	5	A1 5	"	—	—	V-2	26.7	少ない
比 較 例	1	—	"	—	—	not V	25.2	少ない
	2	—	"	10	—	V-0	32.0	非常に多い

A1: シロキサン系共重合体A1

B2: シロキサン系共重合体A2

PC: ポリカーボネート樹脂 パンライトL-1250

C: TBAのエポキシオリゴマー

D: ポリテトラフルオロエチレン

【0039】

\* \* 【表2】

	降伏強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	破断伸び (%)
実施例1	641	81
比較例1	614	94

## 【0040】実施例6

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を市販のポリエチレンテレフタレート樹脂(鐘紡(株)製ベルベットEFG-7)100重量部に対して30重量部添加し、二軸押出機(日本製鋼所製、LABOTEX)で熔融混練し、ペレット状の樹脂組成物を得た。これを用い、射出成形により1/8インチ試験片を作成し難燃性※

※を評価した。結果を表3に示す。

## 【0041】比較例3

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を使用しなかった以外は実施例5と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表3に示す。

## 【0042】

【表3】



15

16

	組 成 (重量部)		物 性
	A	B	難燃性 限界酸素指数 (%)
実施例6	A1 30	PET 100	23.8
比較例3	——	■	22.6

A1: シロキサン系共重合体A1

PET: ポリエチレンテレフタレート樹脂 ベルベットEFG-7

## 【0043】実施例7

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を市販のポリブチレンテレフタレート樹脂(ポリプラスチックス(株)製ジュラネックス2002)100重量部に対して30重量部添加し、二軸押出機(日本製鋼所製、LABOTEX)で溶融混練し、ペレット状の樹脂組成物を得た。これを用い、射出成形により1/8インチ試験片\*

\*を作成し難燃性を評価した。結果を表4に示す。

## 【0044】比較例4

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を使用しなかった以外は実施例5と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表4に示す。

## 【0045】

【表4】

	組 成 (重量部)		物 性
	A	B	難燃性 限界酸素指数 (%)
実施例7	A1 30	PBT 100	22.0
比較例4	——	■	21.5

A1: シロキサン系共重合体A1

PBT: ポリブチレンテレフタレート樹脂 ジュラネックス2002

## 【0046】実施例8

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を市販のポリカーボネート樹脂(帝人化成(株)製バンライトL-1250)70重量部、アクリルニトリル-ブタジエンスチレン共重合体(日本合成ゴム(株)製ABS12)30重量部に対して30重量部添加し、二軸押出機(日本製鋼所製、LABOTEX)で溶融混練し、ペレット状の樹脂組成物を得た。これを用い、射出成形によ\*

\*り1/8インチ試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表5に示す。

## 【0047】比較例5

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を使用しなかった以外は実施例7と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表5に示す。

## 【0048】

【表5】

	組 成 (重量部)		物 性
	A	B	難燃性 限界酸素指数 (%)
実施例8	Al 30	PC 70 ABS 30	26.4
比較例5	——	■	24.2

A1: シロキサン系共重合体A1

PC: ポリカーボネート樹脂 パンライトL-1250

ABS: ABS樹脂 ABS12

## 【0049】実施例9

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を市販のポリカーボネート樹脂 (帝人化成 (株) 製パンライトL-1250) 70重量部、ポリエチレンテレフタレート樹脂 (鐘紡 (株) 製ベルベットEFG-7) 30重量部に対して30重量部添加し、二軸押出機 (日本製鋼所 20 製、LABOTEX) で熔融混練し、ペレット状の樹脂組成物を得た。これを用い、射出成形により1/8インチ\*

\*チ試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表6に示す。

## 【0050】比較例6

製造例1で得られたシロキサン系共重合体A1を使用しなかった以外は実施例8と同様に行い、試験片を作成し難燃性を評価した。結果を表6に示す。

## 【0051】

【表6】

	組 成 (重量部)		物 性
	A	B	難燃性 限界酸素指数 (%)
実施例9	Al 30	PC 70 PET 30	27.2
比較例6	——	■	24.4

A1: シロキサン系共重合体A1

PC: ポリカーボネート樹脂 パンライトL-1250

PET: ポリエチレンテレフタレート樹脂 ベルベットEFG-7

## 【0052】

【発明の効果】以上のように、本発明の難燃性樹脂組成物は、機械特性、耐熱性などの樹脂自体の優れた特性を※

※維持しつつ難燃性に特に優れる。また、本発明の難燃性樹脂組成物は、特に、燃焼時の発煙の抑制に効果がある。

フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>6</sup>

識別記号

FI

C08L 27/18

C08L 27/18

55/02

55/02

67/02

67/02

69/00

69/00

71/12

71/12

//C08L 83/10

67:02)  
(C08L 83/10  
69:00)  
(C08L 83/10  
71:12)  
(C08L 83/10  
55:02)  
(C08L 83/10  
69:00  
55:02)  
(C08L 83/10  
69:00  
67:02)  
(C08L 83/10  
71:02  
25:06)